

УДК 533.9.08

## ВОЗМОЖНОСТИ ЛАЗЕРНЫХ МЕТОДОВ ИССЛЕДОВАНИЯ ДИНАМИКИ МИКРОЧАСТИЦ В ПЛАЗМЕ

М.А. Казарян, Е.А. Морозова\*, П.С. Пляка\*\*

Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН, г. Москва

\*Институт общей физики им. А.М. Прохорова РАН, г. Москва

\*\*Южный научный центр РАН, г. Ростов-на-Дону

E-mail: alena@kapella.gpi.ru

Обсуждаются возможные механизмы действия излучения лазера на нано- и микрочастицы в плазме, предлагается комбинированный метод исследования динамики частиц. Описана экспериментальная установка для исследования распределения нано-частиц в плазме разряда, приводятся предварительные результаты.

### Ключевые слова:

Частицы, лазер, рассеяние, накаливание частиц, газовый разряд, пылевое облако.

### Key words:

Particles, laser, scattering, particles incandescence, gas discharge, dust clouds.

В промышленной технологии и экспериментах часто возникает необходимость контролировать размеры частиц, находящихся в плазме или газовой смеси. Особенно актуальна эта проблема в производстве микрочастиц, в частности для сортировки наноалмазов, поскольку размеры определяют поверхностную активность частицы. Диаметр отдельных полученных частиц удается достаточно точно измерить при помощи метода электронной микроскопии, но актуальным является вопрос калибровки частиц по размерам, в том числе в процессе их образования. Кроме того, зачастую пылевые частицы, введенные извне или выросшие в плазме, неустойчивы, а после остывания плазмы меняют свои свойства, в том числе и размеры. Перспективными являются для этих целей лазерные методы, обладающие широким набором механизмов взаимодействия излучения и частиц [1, 2]. Анализ возможностей лазерных методов исследования микрочастиц в газоразрядной плазме и их экспериментальной проверке посвящена настоящая работа.

Наиболее широко применяемым методом исследования взвешенных частиц является метод лазерного рассеяния [3]. Регистрируя интенсивность и/или угловую зависимость рассеянного света, можно легко установить наличие пылевых частиц и их распределение в пространстве. В ряде случаев освещенное интенсивным лазерным излучением пылевое облако удается наблюдать невооруженным глазом [4]. В основном рассеяние света зависит от размера частиц, их формы, коэффициента преломления и длины волны падающего света. Хорошие результаты удается получить лишь при исследовании однородных по размеру достаточно крупных (больше длины волны) частиц; в этом случае применима теория рассеяния Ми, характеризующаяся сильной угловой зависимостью рассеянного излучения.

С использованием лазеров видимого диапазона для частиц размером более 0,5 мкм рассеянная

компонента ориентирована преимущественно вперед внутри конуса с диапазоном углов около 15°. Если значение диаметра находится между 0,2 и 0,5 мкм, то наблюдается промежуточное рассеяние Рэлея–Ганса, которое более изотропно. Для частиц диаметром менее 0,2 мкм доминирует рассеяние Рэлея с незначительной угловой зависимостью, исчезающей при диаметре частиц менее 40 нм [5]. С уменьшением размера частиц снижается также и интенсивность рассеянного излучения, которая пропорциональна шестой степени радиуса [6]. В результате метод лазерного рассеяния имеет серьезные ограничения в чувствительности для частиц нанометрового размера.

Для исследования взвешенных частиц малого размера более пригодны методы, основанные на поглощении энергии лазерного излучения, поскольку поглощенная мощность пропорциональна третьей степени радиуса. Большая часть поглощенной энергии фотонов переходит во внутреннюю энергию (теплопроводность плазмы при давлении не более 400 Па пренебрежимо мала), что приводит к разогреву частицы, которая начинает излучать в сплошном спектре, преимущественно инфракрасном. Спектральное распределение излучения нагретых частиц зависит от их размеров, давления в плазме, плотности потока лазерного излучения. Часть энергии теряется также вследствие испарения атомов или молекул с поверхности, а при определенных условиях возможно разрушение частиц пыли вследствие взрывного испарения.

В методе лазерного разогрева (накаливания) пылевых частиц используют, как правило, импульсное излучение, что предотвращает нежелательный разогрев плазмы, повышает чувствительность и добавляет временную компоненту в спектр излучения. Оценки показывают, что частицы размером около 100 нм остывают в плазме низкого давления за время порядка сотен мкс, меньшие частицы остывают быстрее. В результате измерения спектральной зависимости теплового излучения

и ее изменения во времени удастся зафиксировать не только факт наличия пылевых частиц в плазме, но и определить их размер и дисперсию [5, 6]. Метод лазерного накаливания (лазерного нагрева) активно используется во всем мире для исследования пылевых частиц, как в плазме, так и в пламени [5, 6]. В то же время в отечественной науке данный метод практически не применяется.

Прежде чем переходить к созданию технологических установок по калибровке пылевых частиц, нужно провести предварительные исследования для проверки применимости методики и имеющихся инструментов. Для комплексного исследования микрочастиц в низкотемпературной плазме газового разряда низкого давления была разработана установка с использованием импульсного лазера на парах меди (JANTAR – MECHATRON), излучающего на длине волны 510 нм, и непрерывного He-Ne лазера ЛГН-118, рис. 1. Непрерывный He-Ne лазер – 1 предназначен для исследования рассеяния излучения взвешенными в разряде частицами; медный лазер – 2 используется для разогрева частиц. Частота следования импульсов лазера на парах меди составляла 7 кГц, мощность в импульсе 10 Вт при длительности 80 мс. Комбинирование методов позволит, *во-первых*, определить диапазоны применимости каждого из них, а *во-вторых*, исследовать временную эволюцию частиц. Для отработки методики исследований была использована камера – 3 напыления тонких пленок в емкостном высокочастотном разряде. По имеющимся сведениям в такой камере при напылении пленок образуются наночастицы, и нет необходимости в предварительных исследованиях вводить их извне [7]. Плоскости распыляемой мишени – 4 и подогреваемой подложки – 5 располагаются вертикально.

Луч He-Ne лазера диаметром 2 мм и мощностью 25 мВт или коллимированный луч медного лазера диаметром 3 мм и мощностью в импульсе 10 Вт направляются вертикально вниз через верхнее окошко – 6 разрядной камеры. Поскольку угловая зависимость теплового излучения разогретых частиц отсутствует, а угловой зависимостью рассеяния для наноразмерных частиц можно пренебречь, то оптическая система регистрации располагается напротив бокового окна камеры – 7 под углом 90° к падающему излучению. Дополнительная щель – 8 на входе монохроматора МДР-23 – 9 позволяет вырезать из всего пространства камеры только излучение тонкого слоя в области прохождения лазерного луча. Камера помещается на платформе – 10, передвижение которой дает возможность регистрировать распределения вдоль оси разряда. Для исследования рассеяния монохроматор настраивается на длину волны излучения лазера, в экспериментах по накаливанию регистрируется спектр излучения в широкой области видимого и ближнего ИК диапазона. В качестве оптического приемника – 11 применен фотоэлектронный умножитель ФЭУ-100, питаемый напряжением 1600 В, сигнал с которого поступает на специально разработанный широкополосный усилитель – 12 и синхронный детектор – 13, используемый только для импульсного режима.

В экспериментах использовались два типа металлических мишеней: из титана и нержавеющей стали диаметром 48 мм, в качестве рабочего газа применялся кислород. В камере возбуждался разряд постоянного тока с ярко выраженной асимметрией. Отрицательное напряжение через токоограничивающий резистор номиналом 2 кОм подводилось к металлическому электроду, служащему мишенью, заземленный корпус камеры являлся ано-

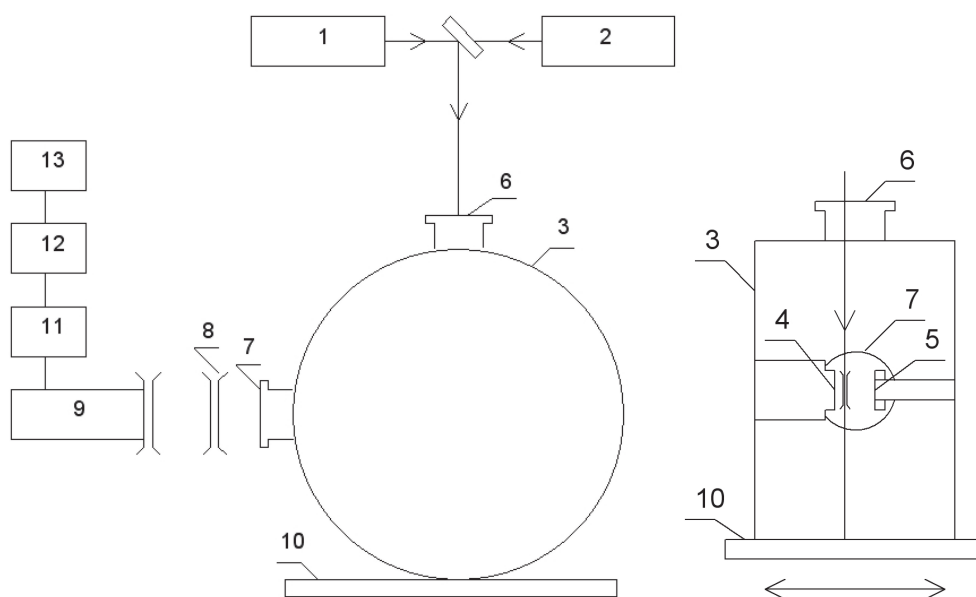
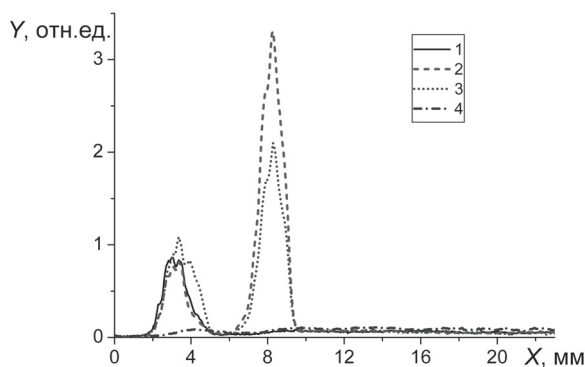


Рис. 1. Принципиальная схема лазерной установки для исследования нано- и микрочастиц в плазме разряда

дом. Для обеих мишеней было достоверно установлено образование пылевого облака вблизи границы слоя пространственного заряда (СПЗ). Для условий эксперимента расстояние от электрода до начала катодного свечения составляет 3 мм. На рис. 2 показаны графики распределения интенсивности рассеянного излучения вдоль оси камеры при распылении титана. Кривые — 2 и 3 соответствуют наличию рассеивающего облака в координате  $X=8$  мм микрочастиц вблизи границы СПЗ. При выключенном разряде, и, следовательно, отсутствии скопления микрочастиц рассеяние в данной координате не наблюдается (кривая — 1). При выключенном лазере (кривая — 4) наблюдается лишь свечение разряда, которое на этом участке спектра очень слабое. Первый максимум, наблюдаемый на графиках (кривые — 1–3) образуется за счет рассеяния излучения поверхностью распыляемой мишени, расположенной в координате  $X=3$  мм. Аналогичные результаты, но с меньшей интенсивностью рассеянного света, получены и при распылении нержавеющей стали.



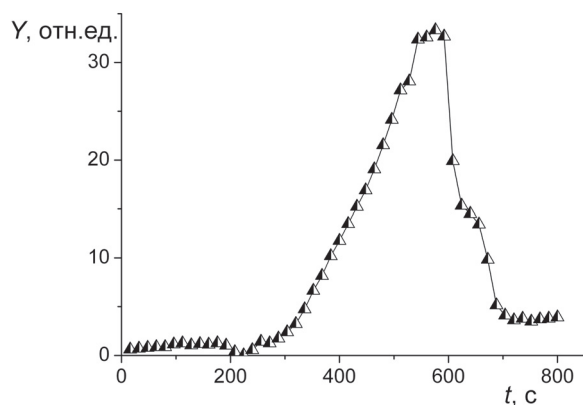
**Рис. 2.** Зависимость интенсивности рассеянного излучения от координаты вдоль оси разряда. Давление кислорода 67 Па. Плотность мощности 176 кВт/м<sup>2</sup>

Накапливание частиц пыли в плазме разряда именно вблизи границы СПЗ наблюдалось и ранее, что объясняется суперпозицией сил кулоновского взаимодействия заряженных частиц между собой и с полем разряда, а также явлениями переноса [8]. Как правило, устойчивые пылевые облака наблюдаются при горизонтальном расположении электродов с обязательным участием сил гравитации [4]. Но, при определенных условиях [8], тонкие слои частиц образуются в области сильно неоднородного поля даже при вертикальном расположении электродов, что подтверждают и наши эксперименты.

В экспериментах было получено, что при неизменных параметрах разряда существование облака и его плотность не были стабильными во времени, что показано и на рис. 2. Интенсивность рассеянного излучения для кривых (2) и (3) существенно отличается. Рассеяние лазерного излучения вблизи СПЗ наблюдалось не сразу после включения разряда, а спустя длительное (порядка 20 мин) время. То, что образование частиц пыли в плазме разряда

происходит медленно, известно. В работе [9] максимум плотности и размера частиц по результатам измерения интенсивности рассеяния лазерного излучения наблюдался примерно через 200 с после включения высокочастотного разряда в смеси  $Ar/C_2H_2$ , после чего происходили квазипериодические флуктуации и незначительное снижение. Но в наших экспериментах рассеянное облаком пыли излучение существовало ограниченное время, после чего медленно исчезало. Попытки стабилизировать интенсивность рассеяния подбором рабочего давления и мощности результата не принесли. Образование рассеивающего облака наблюдалось в достаточно узком диапазоне удельных мощностей (от 130 до 200 кВт/м<sup>2</sup>) и давлений (от 50 до 80 Па).

Для исследования временной зависимости интенсивности рассеяния лазерного света облаком частиц входная щель оптической системы с пространственным разрешением около 1 мм устанавливалась напротив обнаруженного максимума, и проводилась регистрация амплитуды выходного сигнала в течение продолжительного (до 100 мин.) времени. После появления облака его плотность плавно повышалась в течение сотен секунд, затем более резко уменьшалась в несколько раз, после чего также за несколько сотен секунд спадала до нуля. За время эксперимента наблюдалось до трех циклов существования облака пыли с интервалом около 20 мин, причем плотность облака с каждым разом уменьшалась. После этого возобновить образование рассеивающего слоя удавалось только после охлаждения камеры и повторного включения разряда. На рис. 3 показан участок типичной временной зависимости интенсивности рассеянного излучения при неподвижном положении камеры, постоянной мощности и давлении. Условия эксперимента те же, что и на рис. 2.



**Рис. 3.** Временная зависимость интенсивности излучения, рассеянного тонким облаком частиц пыли вблизи границы СПЗ.

Полученные времена формирования и распада рассеивающего свет пылевого диска на несколько порядков превышают длительности образования стационарных электрических полей, и даже длительность заполнения камеры распыленным веще-

ством. Наиболее вероятным процессом в разряде, влияющим, в том числе и на рост частиц пыли, и приводящий к медленным изменениям плотности облака, является теплоперенос. Это подтверждается в частности повторным образованием скопления частиц только после остывания стенок разрядной камеры. Отметим, что при максимальных значениях плотности пылевого облака его можно было наблюдать визуально даже на фоне яркого свечения разряда. Диаметр диска менялся в пределах от 10 до 40 мм.

Метод лазерного рассеяния прост в реализации и нагляден, но дает информацию лишь о наличии и расположении скопления частиц, но не дает прямого ответа об их размерах. Интенсивность рассеянного излучения пропорциональна как размерам с учетом дисперсии, так и их концентрации. Очень часто, и наши эксперименты это подтверждают, определить диаметр частиц по после остывания плазмы невозможно, поскольку они исчезают, или, по крайней мере, меняют свои размеры, поскольку излучение лазера перестает рассеиваться. Существует возможность выхватывать пылевые частицы непосредственно из плазмы и впрессовывать в подложку при помощи импульсов медного лазера [1, 2]. Проверка этого метода планируется после небольших доработок экспериментальной установки.

Возникающее в виде тонкого диска облако каждый раз имело симметричную относительно оси разряда форму, причем его диаметр был меньше

диаметра мишени. Каких либо перемещений скопления частиц поперек оси и вдоль нее обнаружено не было. Следовательно, динамика рассеяния связана не с миграцией частиц в пространстве камеры, а с изменением их размера и плотности, что перспективно для отработки метода лазерного накаливания. Для регистрации спектральных характеристик раскаленных лазером микрочастиц неустойчивого во времени облака необходимо применение быстродействующих спектрометров с электронным сканированием. Необходимы также дальнейшие поиски режимов устойчивого существования пылевого облака в разряде, одним из вариантов решения этой задачи является применение мишеней из диэлектрических материалов, например сложных оксидов.

В результате исследований с использованием метода лазерного рассеяния установлено, что в условиях эксперимента при распылении металлической мишени формируются частицы микрометрового размера. Частицы эти скапливаются в виде тонкого диска вблизи границы СПЗ, даже при вертикальном положении активного электрода. Диаметр диска всегда был меньше диаметра мишени. Облако устойчиво по местоположению, но неустойчиво по плотности (интенсивности рассеянного излучения). Результаты свидетельствуют об изменении диаметра пылевых частиц во времени, их росте и деградации. Обсуждаются направления дальнейших экспериментов с применением импульсного лазера на парах меди.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Захаров С.Д., Казарян М.А., Коротков Н.П. Ударный разгон частиц в поле лазерного излучения // Письма в ЖЭТФ. – 1994. – Т. 60. – Вып. 5. – С. 317–319.
2. Скипетров С.Е., Чеснаков С.С., Захаров С.Д., Казарян М.А., Щеглов В.А. Пондеромоторное действие света в задаче о многократном рассеивании света в случайно-неоднородной среде // Письма в ЖЭТФ. – 1998. – Т. 67. – Вып. 9. – С. 611–615.
3. Selwyn G.S., et al. Particle contamination formation in magnetron sputtering processes // J. Vac. Sci. Technol. – 1997. – V. A15 (4). – P. 2023–2028.
4. Фортон В.Е. и др. Пылевая плазма // Успехи физических наук. – 2004. – Т. 174. – С. 495–544.
5. Selwyn G.S. Optical characterization of particle traps // Plasma Sources Sci. Technol. – 1994. – № 3. – P. 340–347.
6. Stoffels W.W., et al. Detection of dust particles in the plasma by laser-induced heating // J. Vac. Sci. Technol. – 1996. – № A14 (2). – P. 588–594.
7. Мухоморов В.М., Юзюк Ю.И. Гетероструктуры на основе наноразмерных сегнетоэлектрических пленок: получение, свойства и применение. – Ростов на Дону: Изд-во ЮНЦ РАН, 2008. – 224 с.
8. Sommerer T.J., et al. Monte Carlo-fluid hybrid model of the accumulation of dust particles at sheath edges in radio-frequency discharges // Appl. Phys. Lett. – 1991. – V. 59. – № 6. – P. 636–640.
9. Do H.T., et al. Ion molecule and dust particle formation in Ar/CH<sub>4</sub>, Ar/C<sub>2</sub>H<sub>2</sub> and Ar/C<sub>3</sub>H<sub>6</sub> Radio-frequency Plasmas // Contrib. Plasma Phys. – 2005. – V. 45. – № 5–6. – P. 378–384.

Поступила 27.01.2012 г.